

DOCKET NO.: 267416US0PCT

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

IN RE APPLICATION OF: Takashi ARAKANE, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP03/11898

INTERNATIONAL FILING DATE: September 18, 2003

FOR: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119**  
**AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Commissioner for Patents  
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

**COUNTRY**

Japan

**APPLICATION NO**

2002-275083

**DAY/MONTH/YEAR**

20 September 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP03/11898. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,  
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon  
Attorney of Record  
Registration No. 24,618  
Surinder Sachar  
Registration No. 34,423

Customer Number

**22850**

(703) 413-3000  
Fax No. (703) 413-2220  
(OSMMN 08/03)

Rec'd PCT 11 MAR 2005

10/527530

PCT/JP 03/11898

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

18.09.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2002年 9月20日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2002-275083  
[ST. 10/C]: [JP 2002-275083]

出 願 人  
Applicant(s): 出光興産株式会社

REC'D 06 NOV 2003

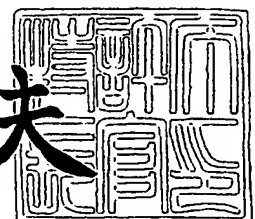
WIPO PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年10月23日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特2003-3087510

【書類名】 特許願

【整理番号】 IK8602

【提出日】 平成14年 9月20日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/00

【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

【請求項の数】 6

【発明者】

    【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

    【氏名】 荒金 崇士

【発明者】

    【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

    【氏名】 岩隈 俊裕

【発明者】

    【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

    【氏名】 細川 地潮

【特許出願人】

    【識別番号】 000183646

    【氏名又は名称】 出光興産株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100078732

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 大谷 保

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 003171

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0000937

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

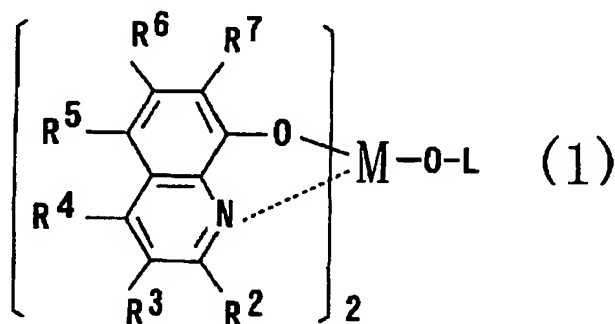
【特許請求の範囲】

【請求項 1】 陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光化合物を含有する発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該陰極と接合した電子注入層を有し、

該電子注入層が、含窒素環の金属キレート錯体、含窒素 5 員環誘導体、非縮合含窒素 6 員環誘導体、及び一つの炭素環を縮合した縮合含窒素 6 員環誘導体から選ばれる少なくとも一種類を主成分として含有し、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物から選ばれた少なくとも一種類を還元性ドーパントとして含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2】 前記含窒素環の金属キレート錯体が、下記一般式 (1) で表される請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 1】

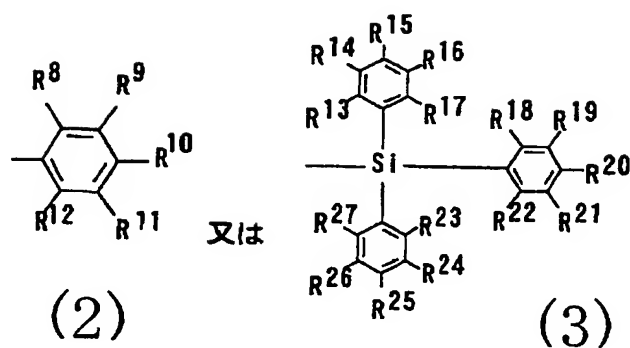


〔式中、 $\text{R}^2 \sim \text{R}^7$  は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、アミノ基、又は炭素数 1～40 の炭化水素基であり、これらは置換されていてもよい。〕

M は、アルミニウム、ガリウム又はインジウムである。

L は、下記一般式 (2) 又は (3) で表される基である。

## 【化2】



(式中、 $R^8 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、 $R^{13} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。)]

【請求項3】 前記含窒素5員環誘導体の含窒素5員環が、イミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環又はチアトリアゾール環である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 前記非縮合含窒素6員環誘導体の非縮合含窒素6員環が、ピリジン、ピラジン又はピリミジンである請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 前記一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体の縮合含窒素6員環が、キノキサリン、キノリン又はベンゾピリミジンである請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 前記還元性ドーパントが、電子注入層と陰極の界面領域に、層状又は島状に添加されている請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、燐光性の発光を利用し、発光効率が高く長寿命の有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

#### 【0002】

##### 【従来の技術】

有機エレクトロルミネッセンス素子（以下エレクトロルミネッセンスをELと略記することがある）は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告（C.W. Tang, S.A. Vanslyke, アプライドフィジックスレターズ（Applied Physics Letters）, 51巻、913頁、1987年等）がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス（8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム）を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

#### 【0003】

有機EL素子の発光材料としてはトリス（8-キノリノラート）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビススチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特許文献1、特許文献2、特許文献3等参照）。

また、近年、有機EL素子の発光層に、発光材料の他に有機リン光材料を利用

することも提案されている（例えば、非特許文献 1、非特許文献 2 参照）。

このように有機 EL 素子の発光層において、有機リン光材料の励起状態の一重項状態と三重項状態とを利用することにより、高い発光効率が達成されている。有機 EL 素子内で電子と正孔が再結合する際にはスピン多重度の違いから一重項励起子と三重項励起子とが 3 : 1 の割合で生成すると考えられているので、隣光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子の 3 ~ 4 倍の発光効率の達成が考えられる。

このような有機 EL 素子においては、3 重項の励起状態又は 3 重項の励起子が消光しないように順次、陽極、有機発光層、電子輸送層（正孔阻止層）、電子注入層、陰極のように層を積層する構成が用いられてきた。有機発光層と陰極間に、有機発光層からの正孔の移動を制限する正孔阻止層を設け正孔を発光層中に効率よく蓄積することによって、電子との再結合確率を向上させ、発光の高効率化を達成することができるが、正孔阻止層と陰極金属を直接接合すると寿命や効率などの性能が著しく低くなるため正孔阻止層と陰極の間に必ず電子注入層が必要であることが認識されていた（例えば、特許文献 4、特許文献 5 参照）。

#### 【 0 0 0 4 】

しかしながら、これら従来の電子注入構成においては、電子輸送層に用いられるフェナントロリン誘導体が、正孔阻止能において高い性能を保有するが劣化しやすく長寿命な素子が得られないという問題があった。そこでフェナントロリン誘導体に代えて 8-ヒドロキシキノリンが 2 配位し、さらに残りの配位子としてアリールオキシを用いた金属錯体（BMq）系の材料を正孔阻止層に用いて寿命を改善した技術が開示されている（特許文献 6 参照）。しかし、この素子においても順次、有機発光層、電子輸送層（正孔阻止層）、電子注入層、陰極のように層を積層する構成が用いられており、より層構成の簡素化が求めれていた。

そこで本発明者は、上記電子注入構成を検討した結果、従来、陰極の材料として用いられている Mg 系合金や酸化 Li は、前記 BMq 系の材料と密着性が不十分であるため正孔阻止層と陰極を接合しても、効率や寿命面で十分な性能が得ることができないという結論に到達し、層構成の簡易化のためには陰極と BMq の密着性を改善するべきであるとの認識が新たに得られた。



さらに、フェナントロリン誘導体に代表される縮合含窒素6員環は、炭素環が2以上縮合しているため、 $\pi$ 共役性が発達しており三重項エネルギーが2.6 eV以下であり発光層で生成する三重項を消光してしまう。しかし、これを避けるために、含窒素5員環誘導体、非縮合含窒素6員環誘導体、一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体のいずれかをを用いると、有機EL素子の寿命が短いという問題があった。これは電子輸送する際に、含窒素環誘導体単独では電子輸送能が不十分であり、電子輸送能が劣化しやすいと共に、電子注入層に正孔が注入されると劣化が生じるためである。

【0005】

【特許文献1】

特開平8-239655号公報

【特許文献2】

特開平7-138561号公報

【特許文献3】

特開平3-200289号公報

【特許文献4】

米国特許第6097147号明細書

【特許文献5】

国際特許公報WO01/41512号明細書

【特許文献6】

特開2001-284056号公報

【非特許文献1】

D.F.O'Brien and M.A.Baldo et al "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices" Applied Physics letters Vol. 74 No.3, pp442-444, January 18, 1999

【非特許文献2】

M.A.Baldo et al "Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence" Applied Physics letters Vol.75 No.1, pp4-6, July 5, 1999

## 【0006】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、燐光性の発光を用いた有機EL素子において、発光効率が高く、寿命が長い有機EL素子を提供することを目的とする。

## 【0007】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、陰極と電子注入層を密着接合し、該電子注入層が、三重項エネルギーが好ましくは2.65 eV以上であり発光層で生成する三重項を消光しない含窒素環の金属キレート錯体、含窒素5員環誘導体、非縮合含窒素6員環誘導体、及び一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体から選ばれる少なくとも一種類を主成分として含有し、さらに特定の還元性ドーパントを添加することにより、陰極と電子注入層との密着性が改善され、電子注入層の電子輸送能を向上し正孔注入による劣化を抑制できるため、燐光性の発光を利用した有機EL素子の発光効率が高く、寿命が長い有機EL素子が得られることを見出し本発明を完成したものである。

すなわち、本発明は陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光化合物を含有する発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該陰極と接合した電子注入層を有し、該電子注入層が、含窒素環の金属キレート錯体、含窒素5員環誘導体、非縮合含窒素6員環誘導体、及び一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体から選ばれる少なくとも一種類を主成分として含有し、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物から選ばれた少なくとも一種類を還元性ドーパントとして含有する有機EL素子を提供するものである。

## 【0008】

## 【発明の実施の形態】

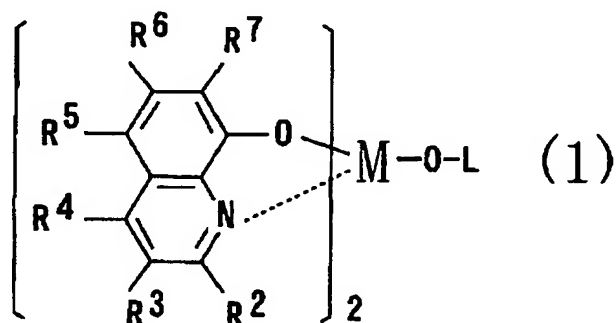
本発明の有機EL素子は、本発明は陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光化合物を含有する発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されて

いる有機EL素子において、該陰極と接合した電子注入層を有し、該電子注入層が、含窒素環の金属キレート錯体、含窒素5員環誘導体、非縮合含窒素6員環誘導体、及び一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体から選ばれる少なくとも一種類を主成分として含有し、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物から選ばれた少なくとも一種類を還元性ドーパントとして含有する。

### 【0009】

前記電子注入層の主成分である含窒素環の金属キレート錯体は、下記一般式(1)で表されると好ましい。

### 【化3】



R<sup>2</sup> ~ R<sup>7</sup> は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、アミノ基、又は炭素数1~40の炭化水素基であり、これらは置換されていてもよい。

### 【0010】

一般式(1)のR<sup>2</sup> ~ R<sup>7</sup> のハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられる。

一般式(1)のR<sup>2</sup> ~ R<sup>7</sup> の置換されていてもよいアミノ基は-NX<sup>1</sup>X<sup>2</sup>と表され、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>の例としては、それぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-

ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシー-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、4-スチリルフェニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-

1-アントリル基、4'-メチルピフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-タ  
 -フェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2  
 -ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3  
 -インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7  
 -インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソイン  
 ドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル  
 基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル  
 基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7  
 -ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、  
 4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラ  
 ニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノ  
 リル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、  
 1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノ  
 リル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-  
 キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバ  
 ゴリル基、2-カルバゴリル基、3-カルバゴリル基、4-カルバゴリル基、1  
 -フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル  
 基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリ  
 ジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェ  
 ナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニ  
 ル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-  
 2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリ  
 ン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンス  
 ロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナ  
 ンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-  
 フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1,  
 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、  
 1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル  
 基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10

－イル基、1, 9－フェナンスロリン－2－イル基、1, 9－フェナンスロリン－3－イル基、1, 9－フェナンスロリン－4－イル基、1, 9－フェナンスロリン－5－イル基、1, 9－フェナンスロリン－6－イル基、1, 9－フェナンスロリン－7－イル基、1, 9－フェナンスロリン－8－イル基、1, 9－フェナンスロリン－10－イル基、1, 10－フェナンスロリン－2－イル基、1, 10－フェナンスロリン－3－イル基、1, 10－フェナンスロリン－4－イル基、1, 10－フェナンスロリン－5－イル基、2, 9－フェナンスロリン－1－イル基、2, 9－フェナンスロリン－3－イル基、2, 9－フェナンスロリン－4－イル基、2, 9－フェナンスロリン－5－イル基、2, 9－フェナンスロリン－6－イル基、2, 9－フェナンスロリン－7－イル基、2, 9－フェナンスロリン－8－イル基、2, 9－フェナンスロリン－10－イル基、2, 8－フェナンスロリン－1－イル基、2, 8－フェナンスロリン－3－イル基、2, 8－フェナンスロリン－4－イル基、2, 8－フェナンスロリン－5－イル基、2, 8－フェナンスロリン－6－イル基、2, 8－フェナンスロリン－7－イル基、2, 8－フェナンスロリン－9－イル基、2, 8－フェナンスロリン－10－イル基、2, 7－フェナンスロリン－1－イル基、2, 7－フェナンスロリン－3－イル基、2, 7－フェナンスロリン－4－イル基、2, 7－フェナンスロリン－5－イル基、2, 7－フェナンスロリン－6－イル基、2, 7－フェナンスロリン－8－イル基、2, 7－フェナンスロリン－9－イル基、2, 7－フェナンスロリン－10－イル基、1－フェナジニル基、2－フェナジニル基、1－フェノチアジニル基、2－フェノチアジニル基、3－フェノチアジニル基、4－フェノチアジニル基、1－フェノキサジニル基、2－フェノキサジニル基、3－フェノキサジニル基、4－フェノキサジニル基、2－オキサゾリル基、4－オキサゾリル基、5－オキサゾリル基、2－オキサジアゾリル基、5－オキサジアゾリル基、3－フラザニル基、2－チエニル基、3－チエニル基、2－メチルピロール－1－イル基、2－メチルピロール－3－イル基、2－メチルピロール－4－イル基、2－メチルピロール－5－イル基、3－メチルピロール－1－イル基、3－メチルピロール－2－イル基、3－メチルピロール－4－イル基、3－メチルピロール－5－イル基、2－t－ブチルピロール－4－イル基、3－（2－フ

エニルプロピル) ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*t*-ブチル-1-インドリル基、4-*t*-ブチル-1-インドリル基、2-*t*-ブチル-3-インドリル基、4-*t*-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

#### 【0011】

一般式(1)の $R^2 \sim R^7$ の前記炭素数1~40の炭化水素基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、アラルキル基、アリーロキシ基、アルコキシカルボニル基等が挙げられる。

#### 【0012】

前記置換もしくは無置換のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノ

エチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

#### 【0013】

前記置換もしくは無置換のアルケニル基の例としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

前記置換もしくは無置換のシクロアルキル基の例としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

#### 【0014】

前記置換もしくは無置換のアルコキシ基は $-OY^1$ と表され、 $Y^1$ の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1



、3-ジブロモイソプロピル基、2、3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1、2、3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1、2-ジヨードエチル基、1、3-ジヨードイソプロピル基、2、3-ジヨード-*t*-ブチル基、1、2、3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1、2-ジアミノエチル基、1、3-ジアミノイソプロピル基、2、3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1、2、3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1、2-ジシアノエチル基、1、3-ジシアノイソプロピル基、2、3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1、2、3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1、2-ジニトロエチル基、1、3-ジニトロイソプロピル基、2、3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1、2、3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

#### 【0015】

前記置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、*p*-ターフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-3-イル基、*p*-ターフェニル-2-イル基、*m*-ターフェニル-4-イル基、*m*-ターフェニル-3-イル基、*m*-ターフェニル-2-イル基、*o*-トリル基、*m*-トリル基、*p*-トリル基、*p*-*t*-ブチルフェニル基、*p*-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-*t*-ブチル-*p*-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

#### 【0016】

前記置換もしくは無置換の芳香族複素環基の例としては、1-ピロリル基、2

ーピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2

ーイル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基

、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*t*-ブチル-1-インドリル基、4-*t*-ブチル-1-インドリル基、2-*t*-ブチル-3-インドリル基、4-*t*-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

#### 【0017】

前記置換もしくは無置換のアラルキル基の例としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-*t*-ブチル基、 $\alpha$ -ナフチルメチル基、1- $\alpha$ -ナフチルエチル基、2- $\alpha$ -ナフチルエチル基、1- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、 $\beta$ -ナフチルメチル基、1- $\beta$ -ナフチルエチル基、2- $\beta$ -ナフチルエチル基、1- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、*p*-メチルベンジル基、*m*-メチルベンジル基、*o*-メチルベンジル基、*p*-クロロベンジル基、*m*-クロロベンジル基、*o*-クロロベンジル基、*p*-ブロモベンジル基、*m*-ブロモベンジル基、*o*-ブロモベンジル基、*p*-ヨードベンジル基、*m*-ヨードベンジル基、*o*-ヨードベンジル基、*p*-ヒドロキシベンジル基、*m*-ヒドロキシベンジル基、*o*-ヒドロキシベンジル基、*p*-アミノベンジル基、*m*-アミノベンジル基、*o*-アミノベンジル基、*p*-ニトロベンジル基、*m*-ニトロベンジル基、*o*-ニトロベンジル基、*p*-シアノベンジル基、*m*-シアノベンジル基、*o*-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

#### 【0018】

前記置換もしくは無置換のアリアルオキシ基は-OZと表され、Zの例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2

ーピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基

、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサ

ゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル-1-インドリル基、4-t-ブチル-1-インドリル基、2-t-ブチル-3-インドリル基、4-t-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

#### 【0019】

前記置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基は $-COOY^2$ と表され、 $Y^2$ の例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1, 3-ジプロモイソプロピル基、2, 3-ジプロモ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミ

ノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

#### 【0020】

一般式 (1) の  $R^2 \sim R^7$  の置換基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基等が挙げられる。

一般式 (1) の  $R^2 \sim R^7$  の置換基としては、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 10 個以下の炭素原子を含有するハロアルキル基、ハロアルコキシ基、アミノ基、カルボニル基、カルボニルオキシ基、オキシカルボニル基が好ましい。

#### 【0021】

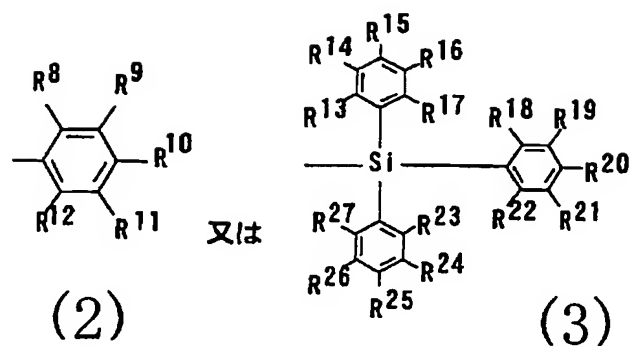
M は、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) 又はインジウム (In) であり、In であると好ましい。

#### 【0022】

一般式 (1) の L は、下記一般式 (2) 又は (3) で表される基である。



## 【化4】



(式中、 $R^8 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成してもよい。また、 $R^{13} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成してもよい。)

## 【0023】

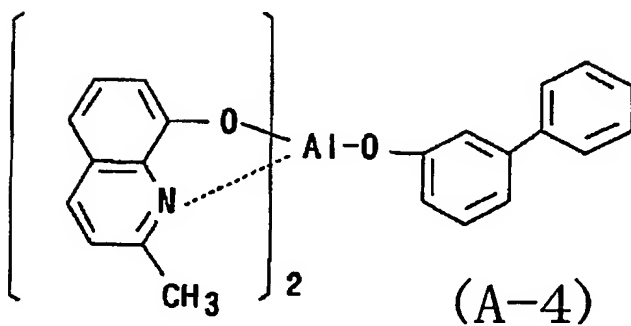
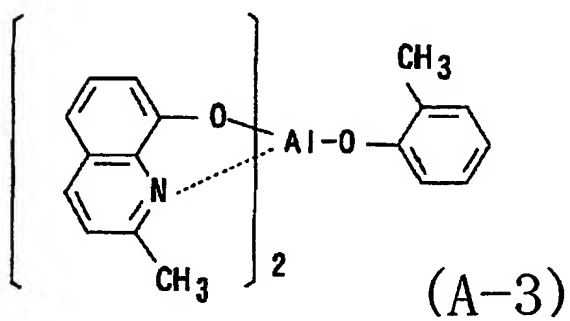
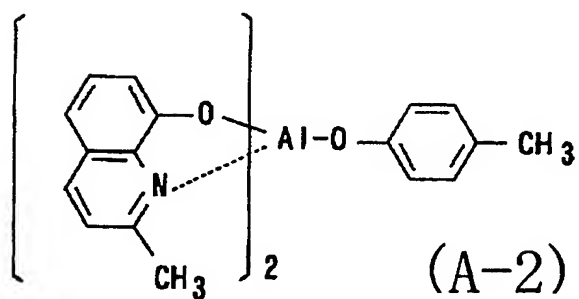
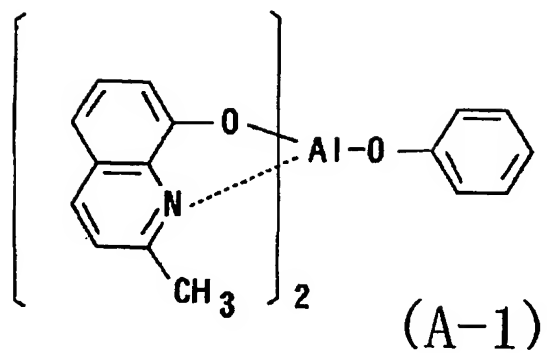
一般式(2)及び(3)の前記 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示す炭素数1～40の炭化水素基としては、前記 $R^2 \sim R^7$ の具体例と同様のものが挙げられる。

また、前記 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の2価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

## 【0024】

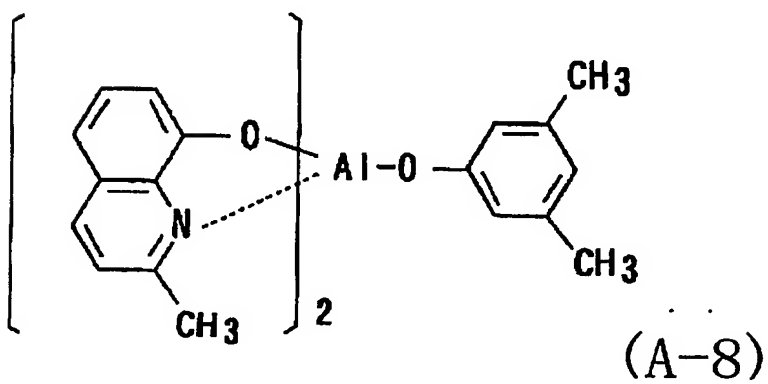
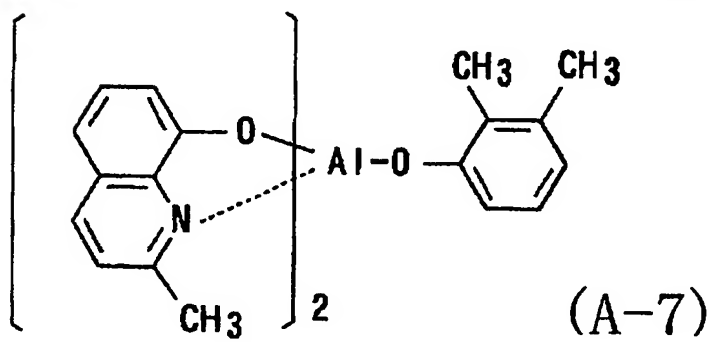
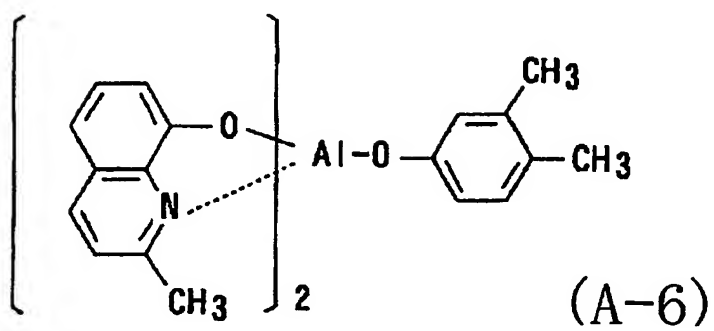
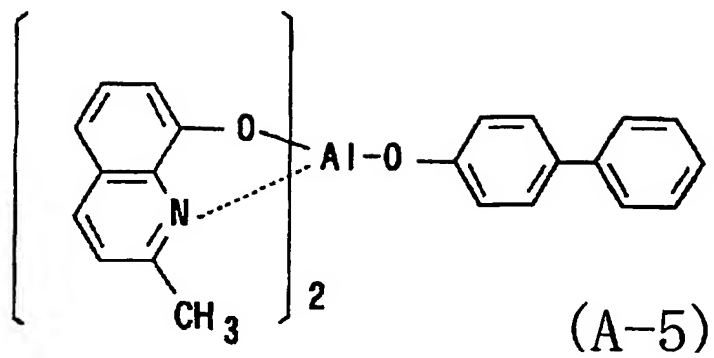
一般式(1)で表される含窒素環の金属キレート錯体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

【化5】



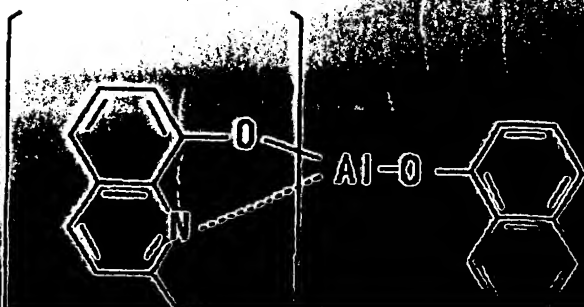
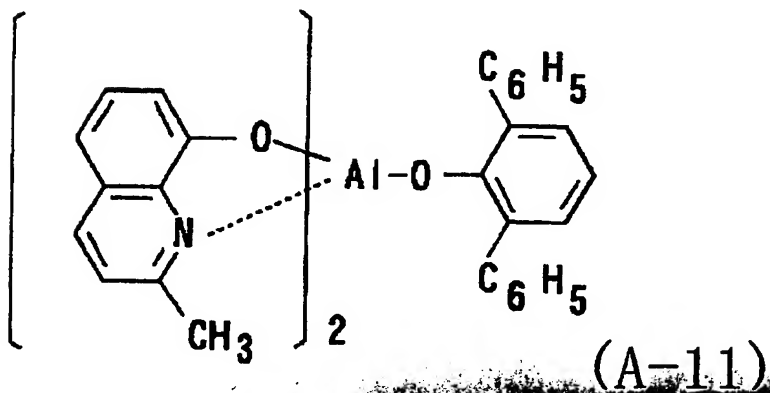
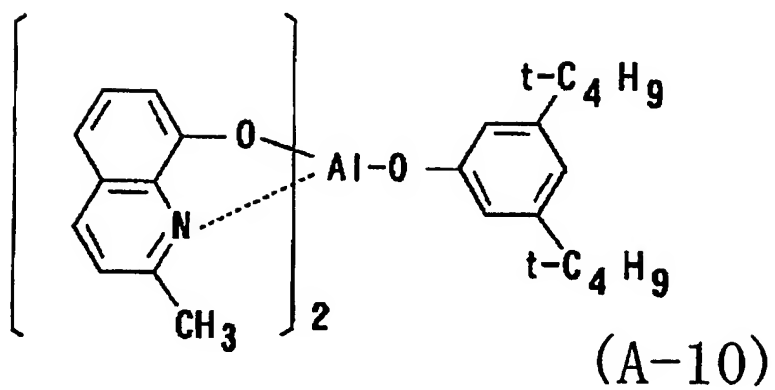
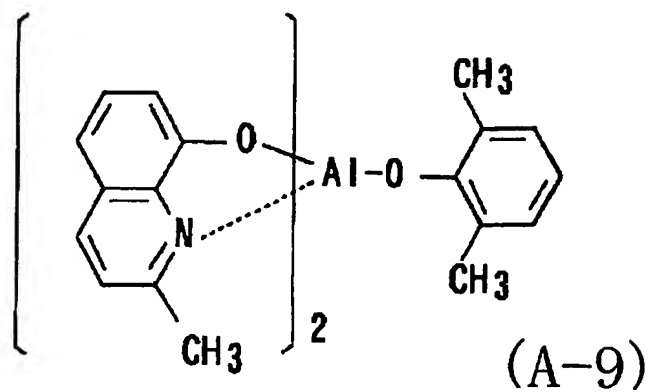
【0025】

【化6】



【0026】

【化7】

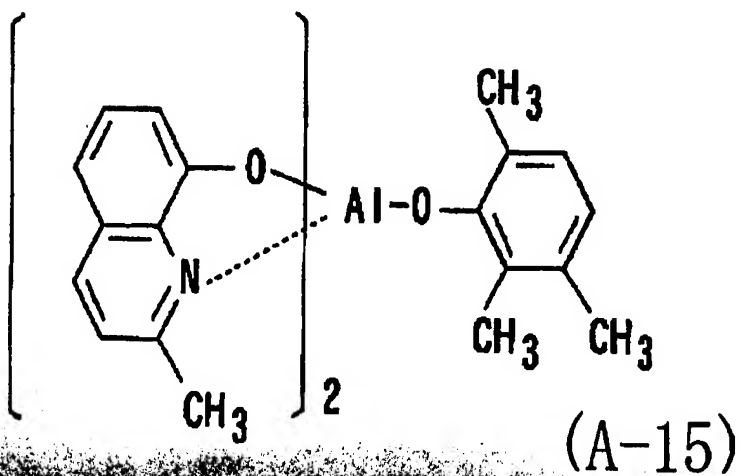
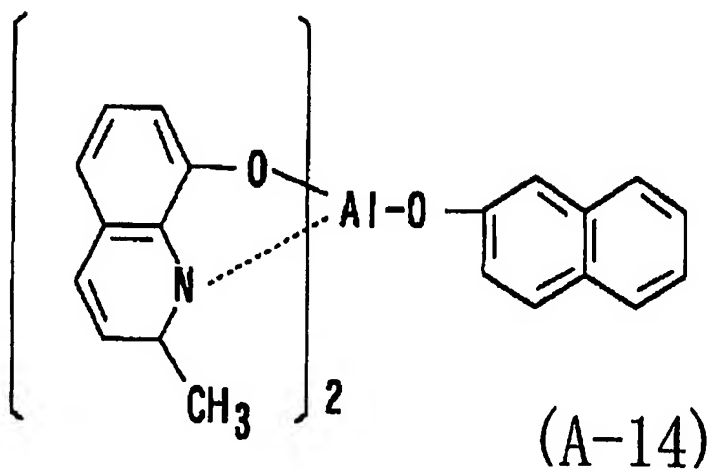
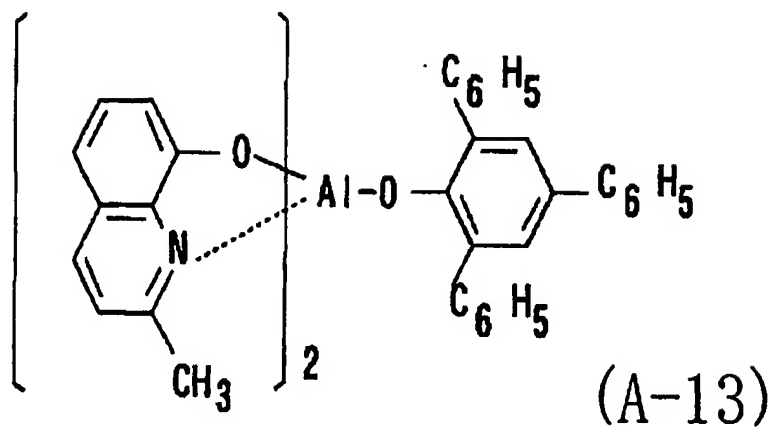


額 2002-275083

ページ: 25/

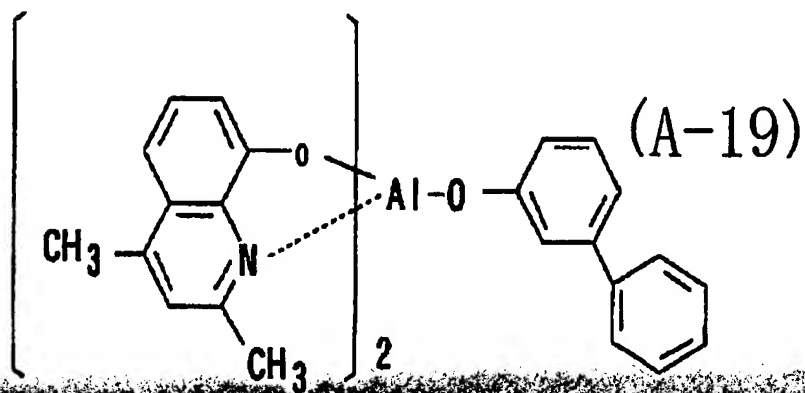
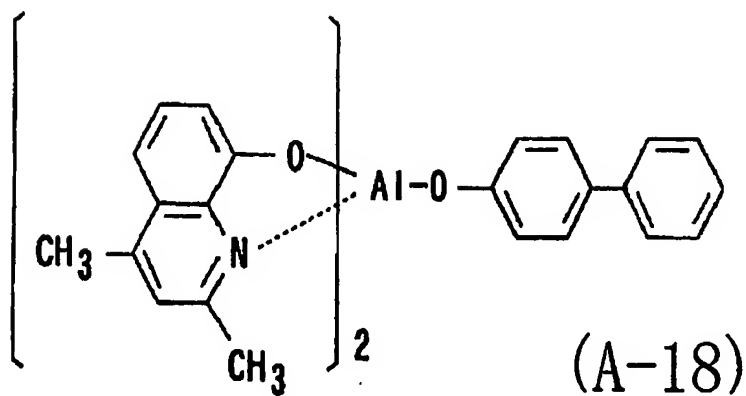
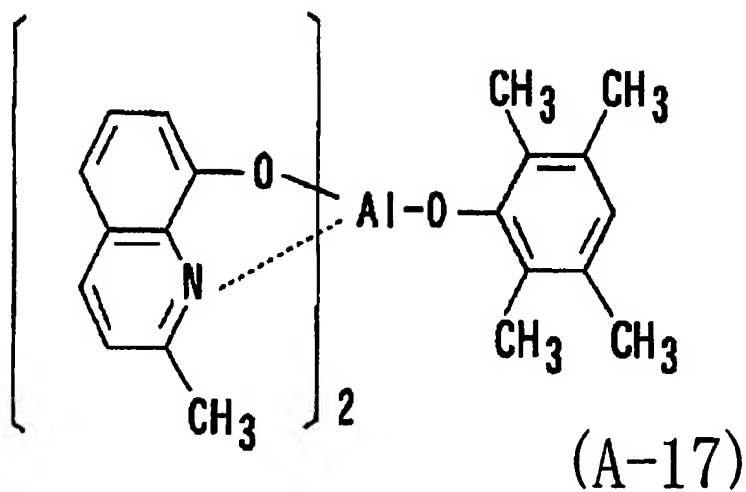
【0027】

【化8】



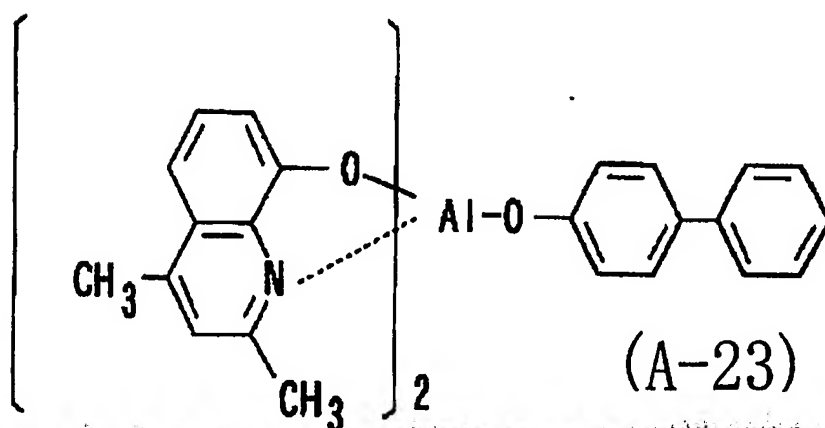
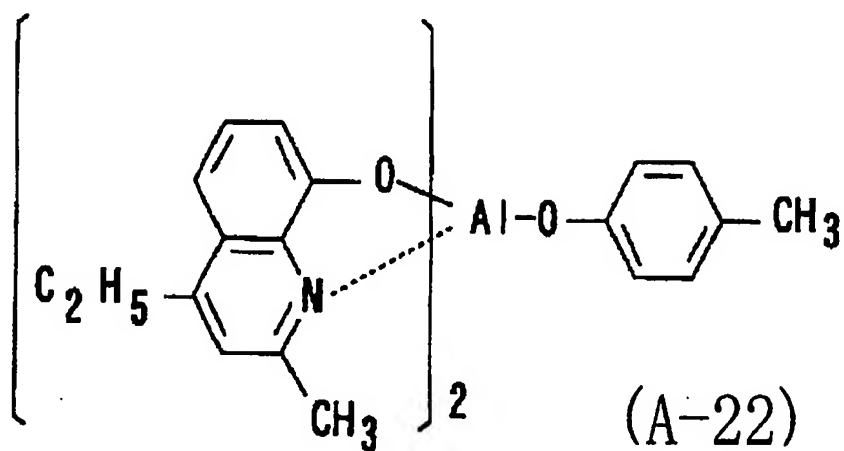
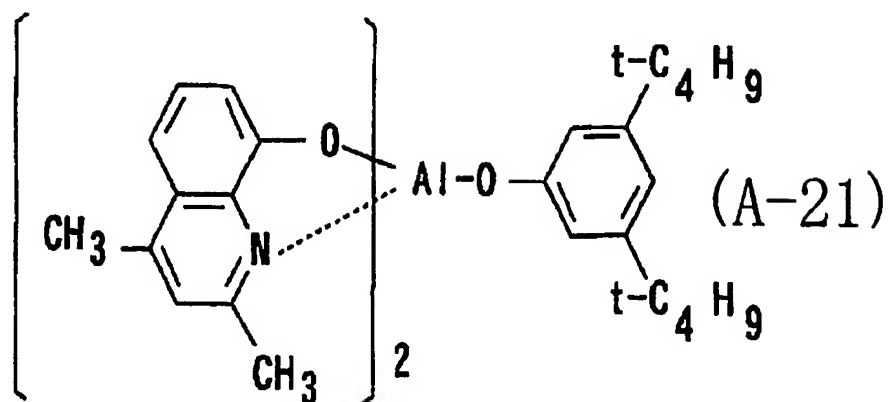
【0028】

【化9】



【0029】

【化10】



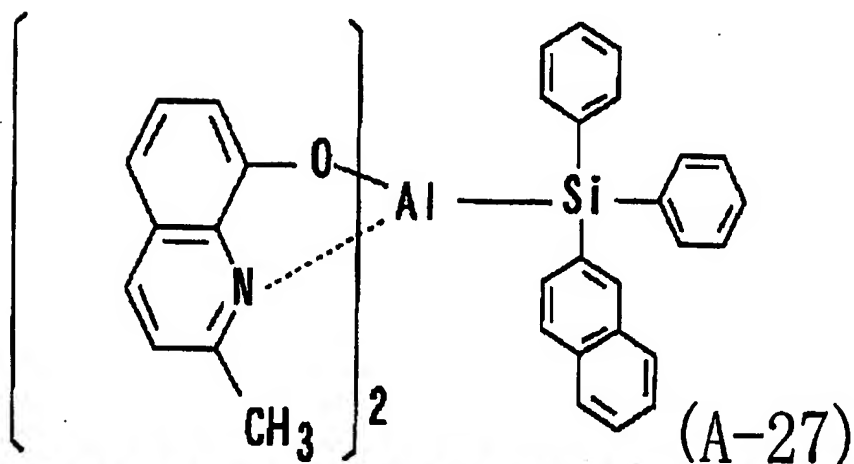
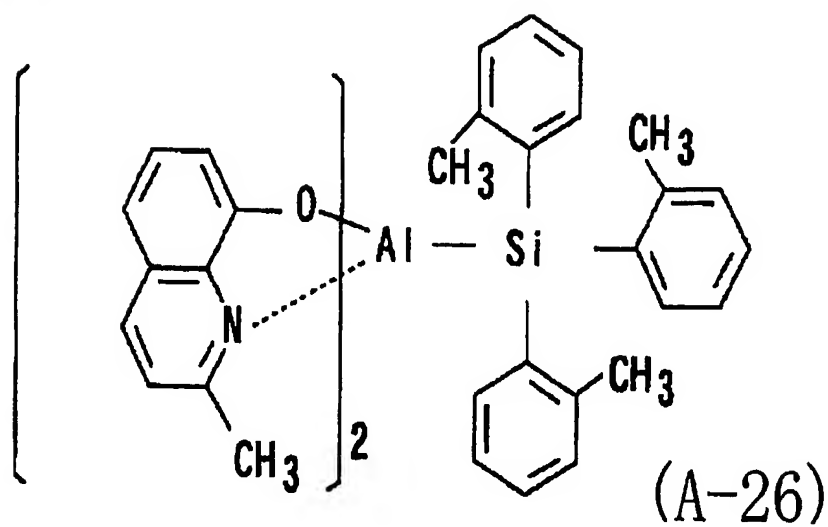
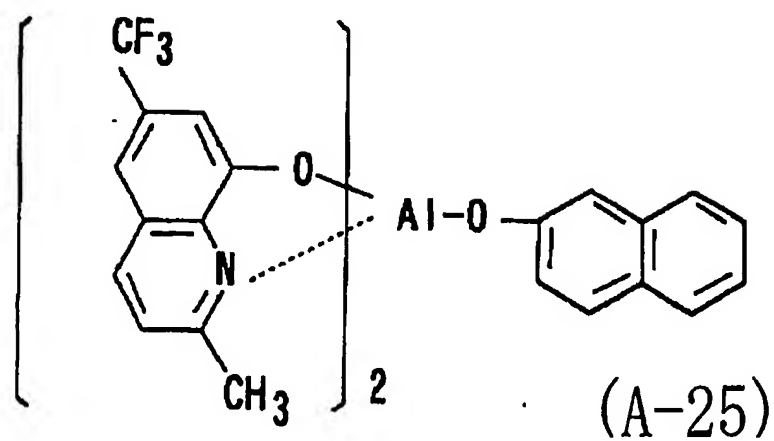


額2002-275083

ページ： 29/

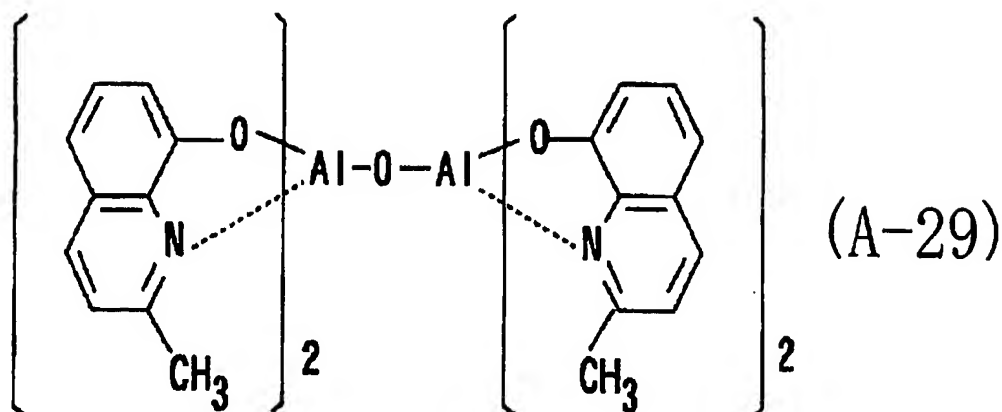
【0030】

【化11】



【0031】

【化12】

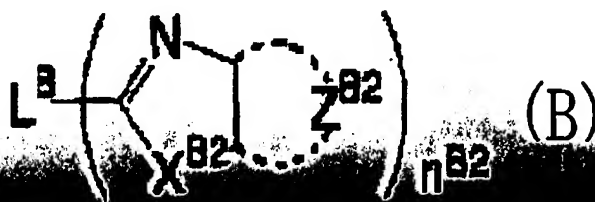


【0032】

前記電子注入層の主成分である含窒素5員環誘導体における、含窒素5員環としては、イミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素5員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環であり、特に好ましくは、下記一般式 (B) で表されるものである。

【0033】

【化13】



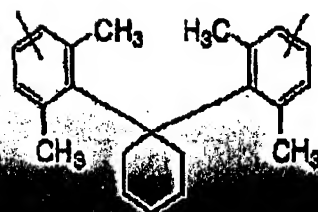
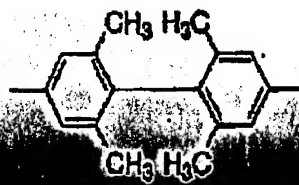
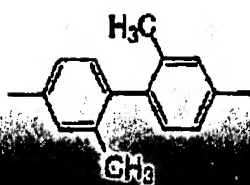
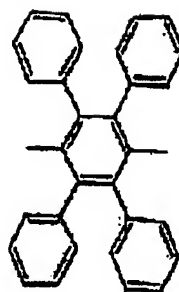
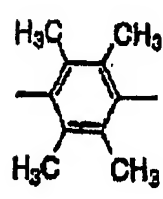
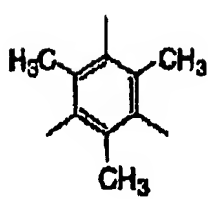
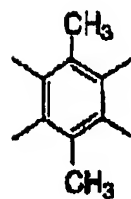
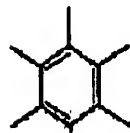
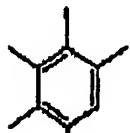
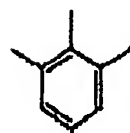
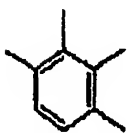
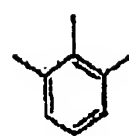
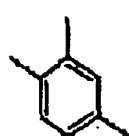
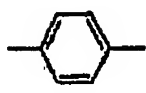
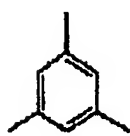
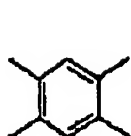
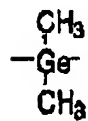
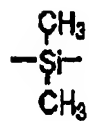
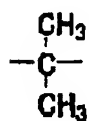
しい。

L<sup>B</sup> の芳香族炭化水素基及び芳香族複素基は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

L<sup>B</sup> の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。

【0035】

【化14】



〔0036〕

チル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8のアルケニル基であり、例えば、ビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8のアルキニル基であり、例えば、プロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。)であり、アルキル基であると好ましい。

#### 【0037】

R<sup>B2</sup>の芳香族炭化水素基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、さらに好ましくは炭素数6~12の芳香族炭化水素基であり、例えば、フェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。

#### 【0038】

R<sup>B2</sup>の複素環基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、さらに好ましくは炭素数2~10の複素環基であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。この複素環基の例としては、例えば、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレンオフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、チラチリジン、キノキサリン

ン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、さらに好ましくはキノリンである。

#### 【0039】

R<sup>B2</sup>で表される脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基及び複素環基は置換基を有していてもよく、置換基としては前記L<sup>B</sup>で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

R<sup>B2</sup>として好ましくは脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基又は複素環基であり、より好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、さらに好ましくは炭素数6～12のもの）又は芳香族炭化水素基であり、さらに好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、さらに好ましくは炭素数2～10のもの）である。

X<sup>B2</sup>として好ましくは-O-、=N-R<sup>B2</sup>であり、より好ましくは=N-R<sup>B2</sup>であり、特に好ましくは=N-R<sup>B2</sup>である。

#### 【0040】

Z<sup>B2</sup>は、芳香族環を形成するために必要な原子群を表す。Z<sup>B2</sup>で形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族複素環のいずれでもよく、具体例としては、例えば、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレノフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、さらに好ましく

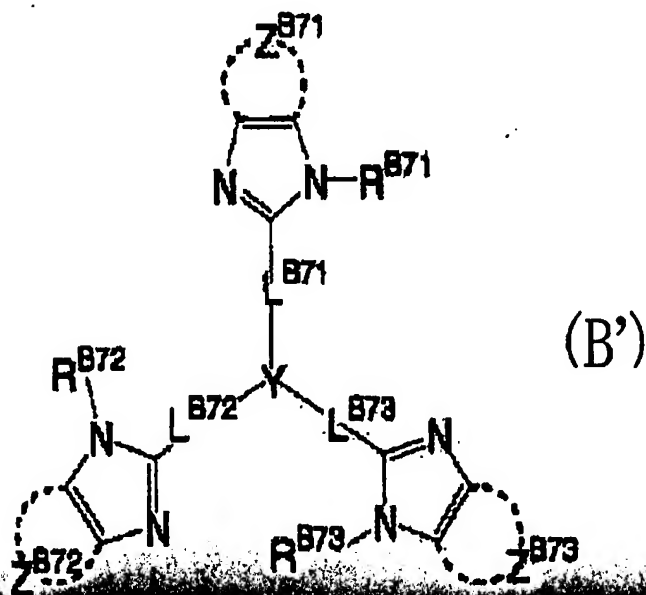
シカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

$n^{B2}$ は、1～4の整数であり、2～3であると好ましい。

【0042】

前記一般式(B)で表される含窒素5員環誘導体のうち、さらに好ましくは下記一般式(B')で表されるものが好ましい。

【化15】



【0043】

一般式(B')中、 $R^{B71}$ 、 $R^{B72}$ 及び $R^{B73}$ は、それぞれ一般式(B)に於



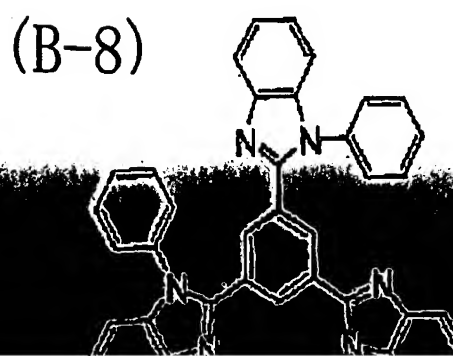
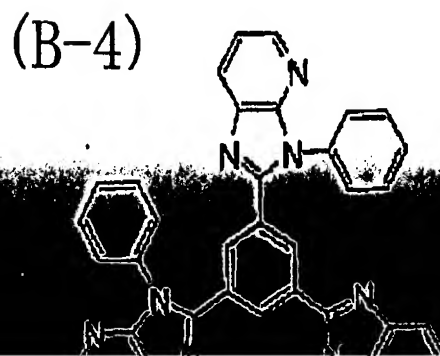
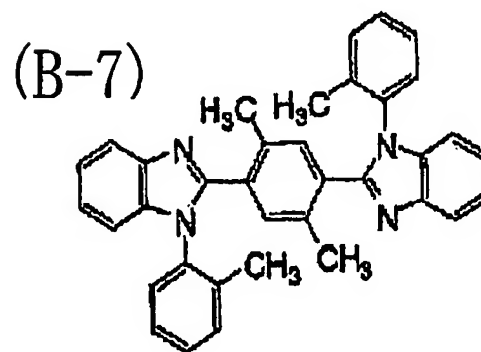
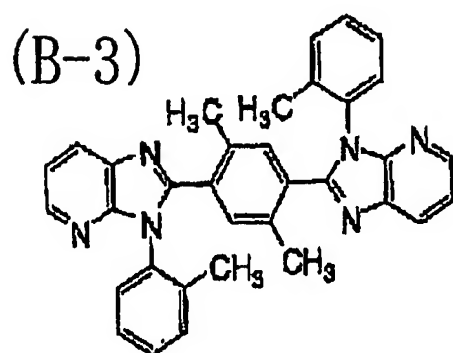
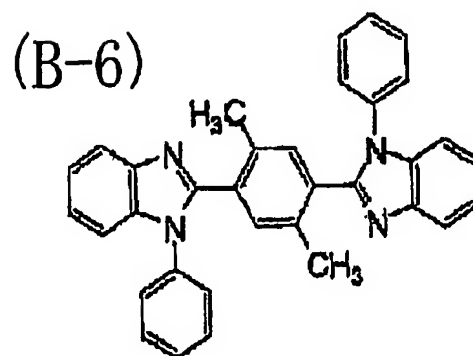
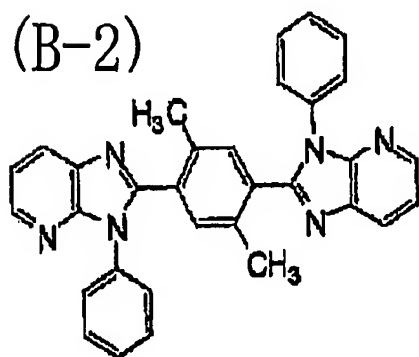
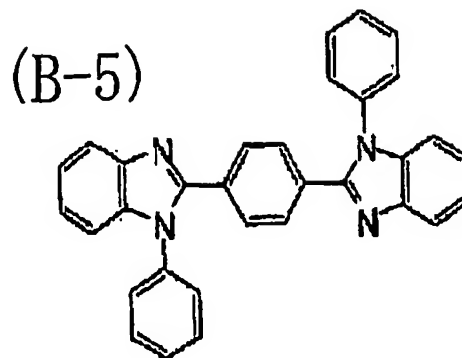
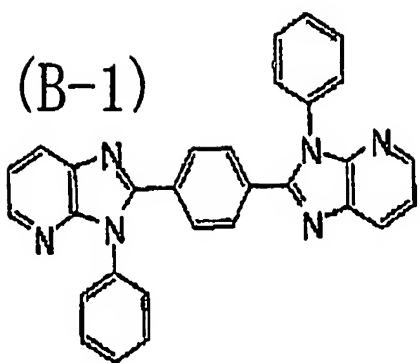
水素環基、二価の芳香族複素環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。LB71、LB72 及び LB73 は置換基を有していてもよく、置換基としては前記一般式 (B) における LB で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

Y は、窒素原子、1, 3, 5-ベンゼントリイル基又は 2, 4, 6-トリアジントリイル基を表す。1, 3, 5-ベンゼントリイル基は 2, 4, 6-位に置換基を有していてもよく、置換基としては、例えば、アルキル基、芳香族炭化水素環基、ハロゲン原子などが挙げられる。

#### 【0044】

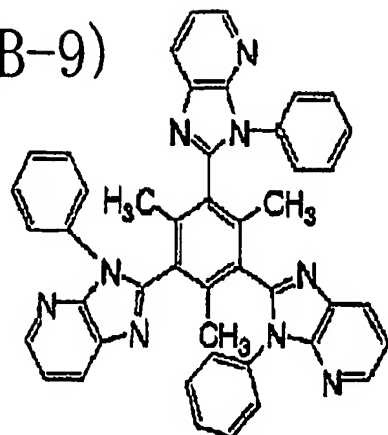
一般式 (B) 又は (B') で表される含窒素 5 員環誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

【化16】

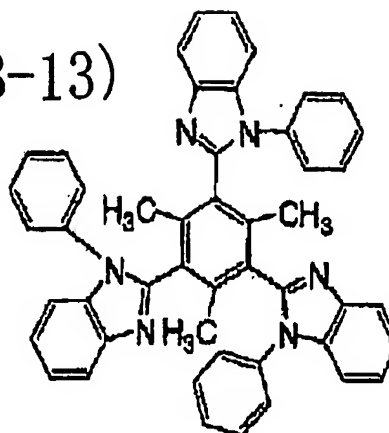


【化17】

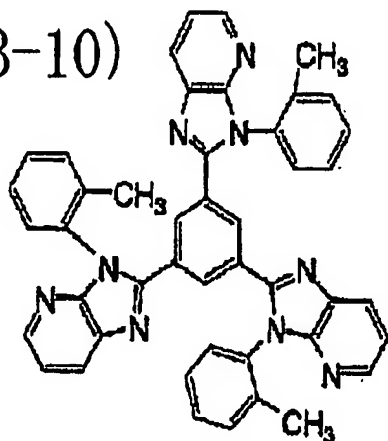
(B-9)



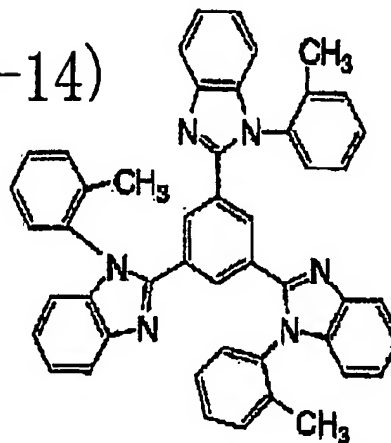
(B-13)



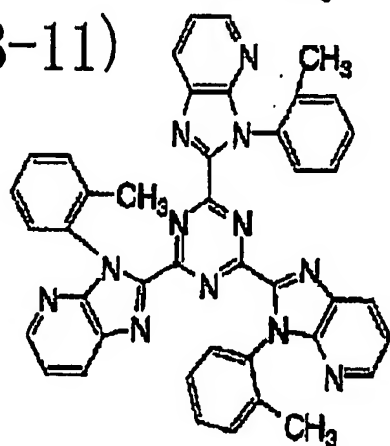
(B-10)



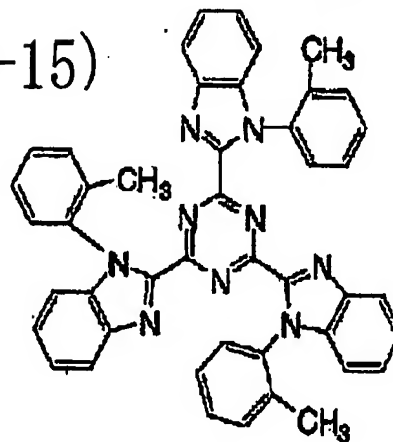
(B-14)



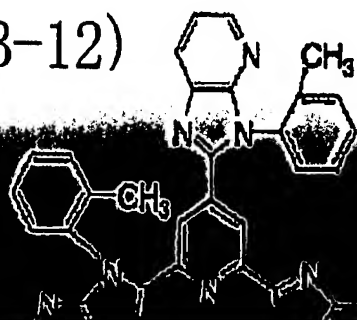
(B-11)



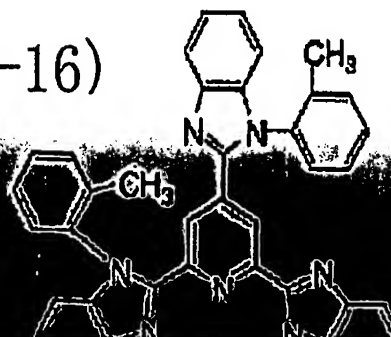
(B-15)



(B-12)



(B-16)



ジン、ピリミジンが好ましい。また、非縮合含窒素6員環誘導体としては、トリフェニルピリジン、トリフェニルピラジン、トリフェニルピリミジン、トリフェニルτριαジン及びこれらの2量体もしくは3量体等が挙げられ、好ましくはトリフェニルピリジン又はトリフェニルピリミジンの2量体であり、さらに好ましくはトリフェニルピリミジンの2量体である。

また、この非縮合含窒素6員環誘導体は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

#### 【0047】

前記電子注入層の主成分である一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体の縮合含窒素6員環としては、キノキサリン、キノリン、ベンゾピリミジン等が挙げられ、キノリン、ベンゾピリミジンが好ましい。また、一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体としては、トリフェニルキノキサリン、トリフェニルキノリン、トリフェニルベンゾピリミジン及びこれらの2量体もしくは3量体等が挙げられ、好ましくはトリフェニルキノリン又はトリフェニルベンゾピリミジンの2量体であり、さらに好ましくはトリフェニルキノリン又はトリフェニルベンゾピリミジンの2量体である。

ルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

#### 【0048】

本発明における電子注入層は、含窒素環の金属キレート錯体、含窒素5員環誘導体、非縮合含窒素6員環誘導体、及び一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体から選ばれる少なくとも一種類を主成分として含有することに加え、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物から選ばれた少なくとも一種類を還元性ドーパントとして含有することが必須である。前記アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物、及び希土類金属化合物としては、それぞれの酸化物やハロゲン化物が挙げられる。ここで、本発明で用いる還元性ドーパントは電子注入層と陰極の界面領域に添加され電子注入効率を上昇させる化合物と定義される。還元性ドーパントは前記界面領域に添加されると好ましく、界面領域に含有される有機層の少なくとも一部を還元しアニオン化する。

#### 【0049】

前記アルカリ金属としては、Na (仕事関数: 2.36 eV)、K (仕事関数: 2.28 eV)、Rb (仕事関数: 2.16 eV)、Cs (仕事関数: 1.9



## 【0052】

還元性ドーパントの添加形態としては、前記界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度としてはモル比で有機物：還元性ドーパント＝100：1～1：100、好ましくは5：1～1：5である。

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1～15 nmで形成する。

還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05～1 nmで形成する。

また、本発明の有機EL素子の電子注入層における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント＝5：1～1：5であると好ましく、2：1～1：2であるとさらに好ましい。

## 【0053】

本発明の有機EL素子の代表的な素子構成としては、陽極／発光層／電子注入層／陰極、陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極、陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極等の構造が挙げられる。

## 【0054】

本発明の有機EL素子における発光層は、ホスト材料と発光性の金属錯体からなると好ましい。発光性の金属錯体としては発光量子収率が高く、発光素子の外

2 裳華房社 山本明夫著 1982年発行、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」p71-p77, pl35-pl46 Springer-Verlag 社 H. Yersin著 1987年発行等に記載されている化合物群の総称である。前記金属錯体の中心金属としては、遷移金属であればいずれも使用可能であるが、本発明では、中でもロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができ、より好ましいものはイリジウムである。

#### 【0055】

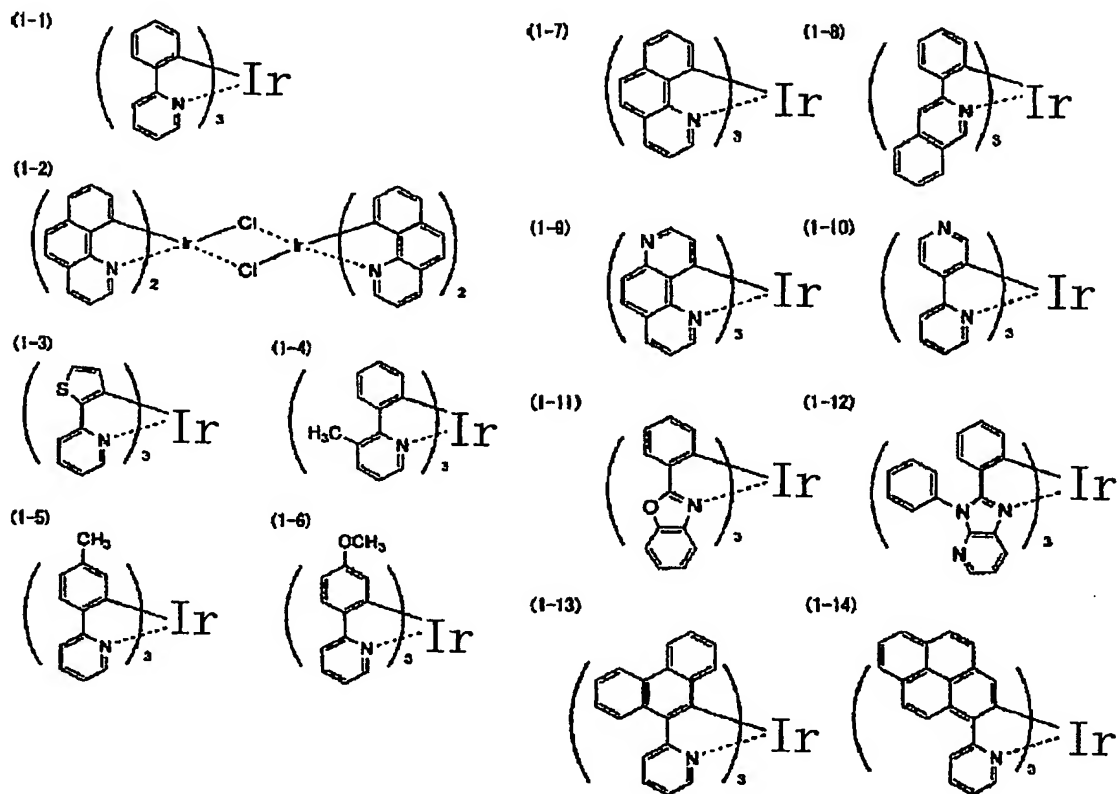
オルトメタル化金属錯体の金属の価数は特に限定しないが、イリジウムを用いる場合には3価が好ましい。オルトメタル化金属錯体の配位子は、オルトメタル化金属錯体を形成しうるものであれば特に限定されない。例えば、アリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環誘導体（アリール基の置換位置は含窒素芳香族ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、アリール基としては例えばフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、ピレニル基などが挙げられ、含窒素芳香族ヘテロ環としては、例えば、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フタラジン、キナゾリン、ナフチリジン、シンノリン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、フェナントリジンなどが挙げられる）、ヘテロアリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環誘導体（ヘテロアリール基の置換位置は含窒素芳香族ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、ヘテロアリール基としては例えば前記の含窒素芳香族ヘテロ環誘導体を含有する基、チオフェニル基、フリル基などが挙げられる）、7, 8-ベンゾキノリン誘導体、ホスフィノアリール誘導体、ホスフィノヘテロアリール誘導体、ホスフィノキシアリール誘導体、ホスフィノキシヘテロアリール誘導体、アミノメチルアリール誘導体



## 【0056】

オルトメタル化金属錯体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

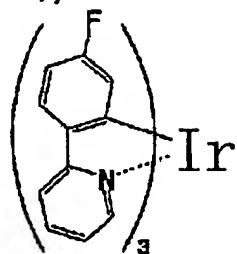
## 【化18】



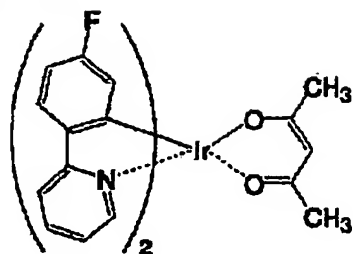
## 【0057】

## 【化19】

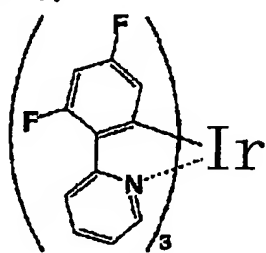
(K-1)



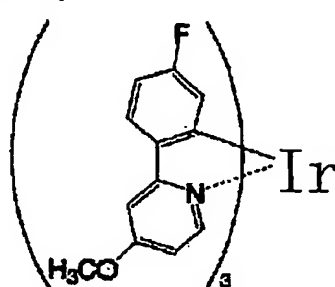
(K-2)



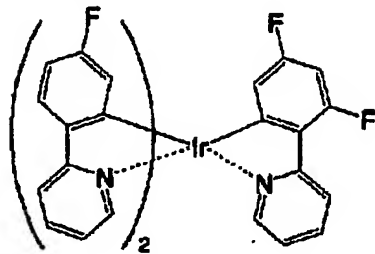
(K-3)



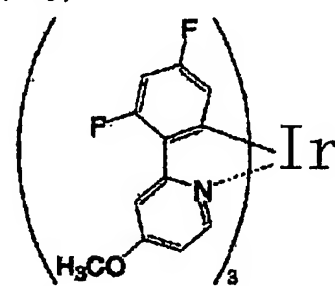
(K-4)



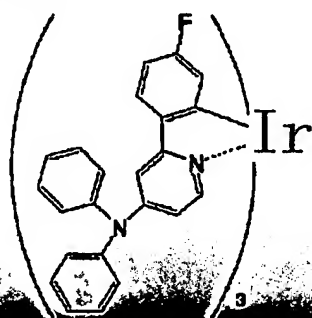
(K-5)



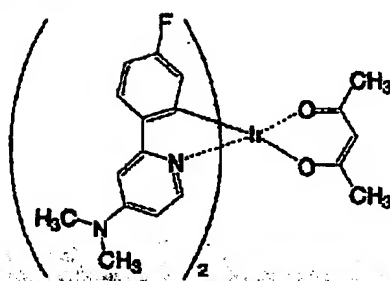
(K-6)



(K-7)



(K-8)



(K-9)



## 【0058】

本発明の有機EL素子における電子注入層については、詳細に上述した通りである。

また、本発明の有機EL素子は、陰極と有機薄膜層の間に絶縁体や半導体で構成される電子輸送層をさらに設けてもよい。この電子輸送層は、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子輸送層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{LiO}$ 、 $\text{Na}_2\text{S}$ 、 $\text{Na}_2\text{Se}$ 、 $\text{NaO}$ 等が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 $\text{CaO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BeO}$ 、 $\text{BaS}$ 、 $\text{CaSe}$ が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 $\text{LiF}$ 、 $\text{NaF}$ 、 $\text{KF}$ 、 $\text{LiCl}$ 、 $\text{KCl}$ 、 $\text{NaCl}$ 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 $\text{CaF}_2$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{SrF}_2$ 、 $\text{MgF}_2$ 、 $\text{BeF}_2$ 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

## 【0059】

電子輸送層を構成する半導体としては、 $\text{Ba}$ 、 $\text{Ca}$ 、 $\text{Sr}$ 、 $\text{Yb}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{Ga}$ 、 $\text{In}$ 、 $\text{Li}$ 、 $\text{Na}$ 、 $\text{Cd}$ 、 $\text{Mg}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{Ta}$ 、 $\text{Sb}$ 及び $\text{Zn}$ の少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属

## 【0060】

正孔注入・輸送層は、発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常  $5.5\text{ eV}$  以下と小さい。このような正孔注入・輸送層としてはより低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば  $10^4 \sim 10^6\text{ V/cm}$  の電界印加時に、少なくとも  $10^{-6}\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{秒}$  であるものが好ましい。

さらに、有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する役割を担うものであり、 $4.5\text{ eV}$  以上の仕事関数を有すると効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金 (ITO)、酸化錫 (NE SA)、金、銀、白金、銅等が挙げられる。また、陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入するために、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極の材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が挙げられる。

## 【0061】

本発明の有機EL素子における各層の形成方法は特に限定されず、従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法 (MBE法) あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子における各有機薄膜層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数 nm から  $1\text{ }\mu\text{m}$  の範囲が好ましい。

## 【0062】

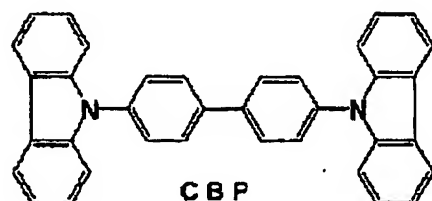
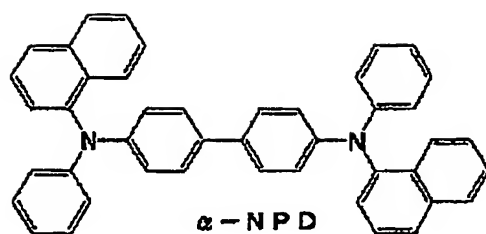
## 【実施例】

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板（ジオマテック社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後の透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極が形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚10nmの銅フタロシアニン膜（以下「CuPc膜」と略記する。）を成膜した。このCuPc膜は、正孔注入層として機能する。CuPc膜の成膜に続けて、この膜上に膜厚30nmで下記4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル膜（以下「 $\alpha$ -NPD膜」と略記する。）を成膜した。この $\alpha$ -NPD膜は正孔輸送層として機能する。さらに、 $\alpha$ -NPD膜上に膜厚40nmで下記化合物CBPを蒸着し発光層を成膜した。同時に隣光性のIr金属錯体として上記（K-3）を添加した。発光層中のIr金属錯体（K-3）の量は7重量%である。この膜上に膜厚10nmで主成分として（1,1'-ビスフェニル）-4-オラート）ビス（2-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム（上記化合物（A-5））と、還元性ドーパントであるLi（Li源：サエスゲッター社製）とを、モル比で化合物（A-5）：Li=3：1で二元蒸着させ、陰極側の電子注入層として化合物（A-5）：Li膜を形成した。この化合物（A-5）：Li膜上に金属Alを蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を製造した。

得られた素子は直流電圧7.8Vで、発光輝度102cd/m<sup>2</sup>、発光効率7.67cd/Aの青緑色発光が得られた。また、初期輝度500cd/m<sup>2</sup>にて一定電流駆動を行ったところ輝度が半減する時間（半減寿命）は350時間であった

【0063】

【化20】



【0064】

実施例 2～3

実施例 1 において、電子注入層における化合物 (A-5) の代わりに、表 1 に記載の化合物を用いたこと以外は同様にして有機 EL 素子を製造し、同様にして発光輝度、発光効率及び半減寿命を測定した。それらの結果を表 1 に示す。

比較例 1

実施例 1 において、電子注入層に還元性ドーパントである Li を添加しなかったこと以外は同様にして有機 EL 素子を製造し、同様にして発光輝度、発光効率及び半減寿命を測定した。それらの結果を表 1 に示す。

比較例 2

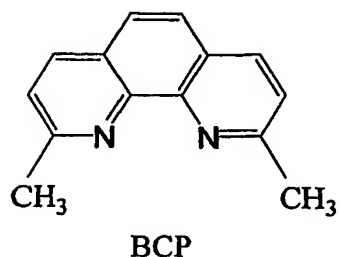
実施例 2 において、電子注入層に還元性ドーパントである Li を添加しなかったこと以外は同様にして有機 EL 素子を製造し、同様にして発光輝度、発光効率及び半減寿命を測定した。それらの結果を表 1 に示す。

【0065】

比較例 3

実施例 1 において、電子注入層における化合物 (A-5) の代わりに、下記 BCP を用いたこと以外は同様にして有機 EL 素子を製造し、同様にして発光輝度

【化21】



【0066】

【表1】

表 1

	電子注入層		電圧 (V)	発光輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光効率 (cd/A)	発光色	半減寿命 (時間)
	主成分	還元性ドーパント					
実施例1	(A-5)	Li	7.8	102	7.67	青緑	850
実施例2	(B-4)	Li	7.5	130	10.2	青緑	720
実施例3	(B-8)	Cs	6.5	101	10.8	青緑	680
比較例1	(A-5)	—	8.3	100	6.42	青緑	120
比較例2	(B-4)	—	8.1	100	7.1	青緑	160
比較例3	BCP	Li	7.8	75	4.24	青緑	230

表1に示したように、実施例1～2の有機EL素子に対して、還元性ドーパントを加えていない比較例1及び2は、発光効率が大幅に劣り、寿命も短かった。また、比較例3では、還元性ドーパントの添加により、電圧は低いものの、発光輝度及び発光効率が大幅に劣り、寿命も短かった。

【0067】

【発明の効果】

以上詳細に説明したように、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、電子注入層の電子輸送能が向上したことにより、燐光性の発光を用い、発光効率が高く、寿命が長い。このため、フルカラー用の有機エレクトロルミネッセンス素子として有用である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燐光性の発光を用い、発光効率が高く、寿命が長い有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 陰極と陽極間に、少なくとも燐光性の発光化合物を含有する発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該陰極と接合した電子注入層を有し、該電子注入層が、含窒素環の金属キレート錯体、含窒素5員環誘導体、非縮合含窒素6員環誘導体、及び一つの炭素環を縮合した縮合含窒素6員環誘導体から選ばれる少なくとも一種類を主成分として含有し、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物から選ばれた少なくとも一種類を還元性ドーパントとして含有する有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【選択図】 なし



特願 2002-275083

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[000183646]

1. 変更年月日

1990年 8月 8日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

氏 名

出光興産株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant:

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☐ FADED TEXT OR DRAWING

☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☒ OTHER: Poor Copies

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**